

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

J1046 U.S. PTO  
09/892577  
06/28/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2000年 8月14日

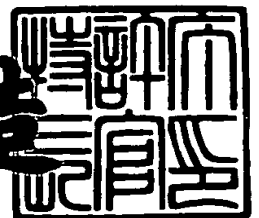
出 願 番 号  
Application Number: 特願2000-245708

出 願 人  
Applicant (s): 花王株式会社

2001年 4月13日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3030944

【書類名】 特許願

【整理番号】 KAP00-0356

【提出日】 平成12年 8月14日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A61K 7/00

【発明者】

    【住所又は居所】 和歌山市湊 1 3 3 4 番地 花王株式会社研究所内

    【氏名】 野元 秀利

【発明者】

    【住所又は居所】 和歌山市湊 1 3 3 4 番地 花王株式会社研究所内

    【氏名】 上野 訓史

【発明者】

    【住所又は居所】 和歌山市湊 1 3 3 4 番地 花王株式会社研究所内

    【氏名】 重野 千年

【発明者】

    【住所又は居所】 和歌山市湊 1 3 3 4 番地 花王株式会社研究所内

    【氏名】 久保 英明

【特許出願人】

    【識別番号】 000000918

    【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100095832

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 細田 芳徳

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 050739

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

特 2 0 0 0 - 2 4 5 7 0 8

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9909457

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ハイドロゲル粒子の製造法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 非架橋型ハイドロゲルを溶解した水性成分溶液中に油性成分を分散させた分散液に振動を与えながら、該分散液を孔から吐出し、液滴を形成させた後、該液滴を冷却固化するハイドロゲル粒子の製造法。

【請求項 2】 乳化剤及び／又は分散剤を用いて油性成分を水性成分溶液中に分散させる請求項 1 記載の製造法。

【請求項 3】 ハイドロゲル粒子の圧縮破断応力が 2 ～40kPa であり、かつ弾性率が 10～150kPa である請求項 1 又は 2 記載の製造法。

【請求項 4】 非架橋型ハイドロゲルがゼリー強度 68.6kPa 以下の寒天である請求項 1 ～ 3 いずれか記載の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、化粧品、医薬品、医薬部外品等に適用される、それらの油性成分を分散させたハイドロゲル粒子の製造法に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

ゲル及び水中油型分散液を含有する溶液を流してカプセル化する方法としては、ノズルから吐出されるアルギン酸塩溶液の液滴から球形のアルギン酸塩のカプセルを製造する方法が提案されている（特表平6-509502号公報）。しかしながら、この方法には、粒子を固化させるための架橋反応工程が必要であるとともに、架橋に用いられるイオン溶液の濃度管理が煩雑である等の欠点がある。

【0 0 0 3】

また、ソフトカプセルの製造方法としては、特開平1-193216号公報に記載されている方法が知られている。しかしながら、この方法には、単分散性の高い粒子を効率よく製造することが困難であるという欠点がある。

【0 0 0 4】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、化粧品、医薬品、医薬部外品等に適用される油性成分を高濃度で安定して分散させた、球形度が高く、単分散性の良好なハイドロゲル粒子を効率よく製造する方法を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明は、非架橋型ハイドロゲルを溶解した水性成分溶液中に、油性成分溶液を分散させた分散液に振動を与えながら、該分散液を孔から吐出し、液滴を形成させた後、該液滴を冷却固化するハイドロゲル粒子の製造法に関する。

【0006】

【発明の実施の形態】

本明細書における「ハイドロゲル粒子」とは、ハイドロゲル中に油性成分を分散させた球状物の1個又は複数からなる群をいい、皮膜と芯成分からなるいわゆる「カプセル」を含まない。

【0007】

また、本明細書において、「非架橋型ハイドロゲル」とは、水を分散液体として持つゲルであって、ゲル化がイオン、例えばカリウムイオンやカルシウムイオン等との反応によって起こるのではなく、寒天やゼラチン等のようにゾル-ゲルの熱可逆性によって起こるものをいう。寒天の水への溶解温度は90℃であり、溶解後、冷却したときのゲル化温度は30～45℃である。

【0008】

非架橋型ハイドロゲルの例としては、寒天、ゼラチン等が挙げられ、これらは単独で又は2種以上を混合して用いることができる。これらの中では寒天が好ましく、使用時の感触の観点から、ゼリー強度が68.6kPa(700g/cm<sup>2</sup>)以下の寒天がより好ましく、19.6kPa(200g/cm<sup>2</sup>)～63.7kPa(650g/cm<sup>2</sup>)がさらに好ましい。ここで、ゼリー強度の測定は日寒水式法を用いる。日寒水式法は、寒天の1.5%溶液を調製し、20℃で15時間放置して凝固せしめたゲルについて、日寒水式ゼリー強度測定器〔(株)木屋製作所製〕により荷重をかけ、その表面1cm<sup>2</sup>あたり20秒間耐えうる最大重量(g数)をもってゼリー強度とする方法である。

【 0 0 0 9 】

ハイドロゲル粒子中における非架橋型ハイドロゲルの含有量は、使用時の感触及びハイドロゲル粒子の洗浄、及び配合時の壊れ防止の観点から、0.1 ～5.0 重量%、好ましくは0.3 ～2.0 重量%であることが望ましい。

【 0 0 1 0 】

油性成分の種類には、特に限定がない。その例としては、化粧品、医薬品、医薬部外品等の油性成分が挙げられる。油性成分の例としては、皮膚保護剤、油剤、香料、化粧品用着色剤及びこれらの混合物が挙げられる。油性成分の形態は、油中水滴型エマルジョンであってもよい。

【 0 0 1 1 】

油性成分の平均粒径は、皮膚上での延ばしやすさの観点から、好ましくは500  $\mu\text{m}$  以下、より好ましくは100  $\mu\text{m}$  以下、さらに好ましくは50  $\mu\text{m}$  以下、もっと好ましくは20  $\mu\text{m}$  以下である。

【 0 0 1 2 】

皮膚保護剤は、皮膚を柔軟にしたり、平滑にすることなどにより、肌荒れを防止する目的として配合されるものである。その例としては、パラフィン、エステル、高級アルコール、グリセライド等の液体油脂類；アクリル系、スチレン系、エーテル系、エステル系、シリコーン系のポリマーエマルジョンやサスペンションが挙げられる。

【 0 0 1 3 】

油剤は、揮発性及び不揮発性のいずれでもよい。その例としては、炭化水素油、エステル油、植物油、低粘度シリコーン油、揮発性シリコーン油用の液状油や、固形パラフィンやワセリン、セラミド、エチレングリコールジ脂肪酸エステル（脂肪酸の炭素数は12～36）、ジアルキルエーテル（炭素数は12～36）等の固形から半固形の油脂類；シリコーン類等が挙げられる。シリコーン類は、シラノール骨格を有するものであればよい。シリコーン類の例としては、メチルポリシロキサン、メチルフェニルシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン、高重合メチルポリシロキサン、シリコーン樹脂、シリコーンゴム、シリコーンビーズ

、アミノ変性シリコーン、アルキル変性シリコーンなどの変性シリコーン等が挙げられる。

【0014】

油性成分としては、分散安定性の観点から、セラミドが好ましく、N-(2-ヒドロキシ-3-ヘキサデシロキシプロピル)-N-2-ヒドロキシエチルヘキサデカナミド(花王(株)製、商品名:スフィンゴリピドE)がより好ましい。

【0015】

化粧品用着色剤としては、水不溶性の顔料、油溶性染料、建染染料、レーキ染料等が挙げられる。顔料としては、例えば、カーボンブラック、タルク、カオリン、マイカ、雲母チタン、ベンガラ、オキシ塩化ビスマス、珪酸マグネシウム、酸化チタン等の無機顔料、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色206号、赤色219号、赤色228号、赤色404号、黄色205号、黄色401号、だいたい色401号、青色404号等の有機顔料が挙げられ、油溶性染料としては、例えば赤色505号、赤色501号、赤色225号、黄色404号、黄色405号、黄色204号、だいたい色403号、青色403号、緑色202号、紫色201号等が挙げられる。建染染料としては、例えば、赤色226号、青色204号、青色201号が挙げられる。レーキ染料としては、例えば、種々の酸性染料をアルミニウムやバリウムでレーキしたもの等が挙げられる。これらの着色剤は、それぞれ単独で又は2種以上を混合して用いることができる。

【0016】

水性成分は、特に限定はされないが、化粧品、医薬品、医薬部外品等に適用される成分であればよい。水性成分の例としては、保湿剤、制汗剤、抗菌剤、殺菌剤及びこれらの混合物が挙げられる。

【0017】

保湿剤としては、グリセリン、グリコール、ソルビトール、ジプロピレングリコール、ポリエチレングリコール等が挙げられる。

【0018】

制汗剤としては、アルミニウムヒドロキシクロリド、タンニン酸、硫酸亜鉛、酸化亜鉛等が挙げられる。

## 【0019】

抗菌剤及び殺菌剤としては、エチルアルコール、イソプロピルアルコール等のアルコール系；フェノール、オルトフェニルフェノール等のフェノール系；ホルムアルデヒド、グルタルアルデヒド等のアルデヒド系；安息香酸（ナトリウム）、10-ウンデシレン酸亜鉛、オクタン酸等のカルボン酸系；グリセリン脂肪酸エステル等のエステル系；2, 4, 4'-トリクロロ-2'-ヒドロキシジフェニルエーテル（トリクロサン）等のエーテル系；2, 4, 5, 6-テトラクロロイソフタロニトリル等のニトリル系；過酢酸、エチレンオキシド等の過酸化物；エポキシ系；ポリビニルピロリドンヨード、o-クロロナフタレン等のハロゲン系；8-オキシキノリン、ビス（2-ピリジルチオ-1-オキシド）亜鉛等のピリジン・キノリン系；トリアジン系；5-クロロ-2-メチル-4-イソチアゾリン-3-オン（ケーソン）等のイソチアゾロン系；1, 2-ベンゾチアゾロン等のイミダゾール・チアゾール系；3, 4, 4'-トリクロロカルバニリド等のアニリド系；クロルヘキシジン塩酸塩等のビグアナイド系；ビス（ジメチルチオカーバモイル）ジスルフィド等のジスルフィド系；アンモニウム-N-メチルジチオカーバメート等のチオカーバメート系；アルキルジメチルベンジルアンモニウムクロライド、セチルジメチルベンジルアンモニウムクロライド、塩化セチルピリジニウム等の界面活性剤；8-オキシキノリン銅等の有機金属；キトサン、ポリリジン、ポリヘキサメチレンビグアニドハイドロクロライド等の高分子型抗菌剤が挙げられる。

## 【0020】

また、ハイドロゲル粒子に粉体を含有させることができる。粉体としては、体質顔料粉末、合成高分子粉末、天然高分子系粉末等が挙げられる。

## 【0021】

体質顔料粉末としては、タルク、カオリン、セリサイト、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸マグネシウム、無水ケイ酸等が挙げられる。

## 【0022】

合成高分子粉末としては、ナイロン粉末、ポリエチレン粉末、ポリスチレン粉末、テトロン粉末、エポキシ樹脂粉末、シリコーン粉末（メチルシリコーンゴム



粉末、ポリメチルシルセスキオキサン粉末)、架橋ポリアクリル酸アルカリ塩粉末、(メタ)アクリル酸エステル系粉末、ポリイミド系粉末、ポリウレタン系粉末、テフロン粉末等が挙げられる。

【0023】

天然高分子系粉末としては、キトサン粉末、澱粉粉末、セルロース粉末、シルク粉末、結晶セルロース粉末等が挙げられる。

【0024】

これらの粉末は、皮膚等に残留したとき、サラサラ感を向上させる等の感触向上剤として機能しうる。特に、疎水性表面を有する粉末は、肌や髪上への残留性を向上させる。このような粉末としては、シリコーン粉末、フッ素樹脂粉末や非水系媒体中でシリコーンマクロマーを分散剤にスチレンや(メタ)アクリル酸エステル類を分散重合により得た粉末及び上記各種粉末をシリコーンやフッ素化合物等の疎水性物質、疎水化剤により被膜処理した複合粉末が好適に用いられる。

【0025】

分散液の製法は、次の通りである。

例えば、水性成分として非架橋型ハイドロゲルをイオン交換水に混合し、その溶解温度以上で十分に溶解させる。別に油性成分同士を混合し、加熱溶解する。ゲル化温度以上で、水性成分と油性成分を混合し、水中油型分散液を調製する。水中油型分散液を調製する方法には特に限定がない。水中油型分散液を調製する際には、各種攪拌機、分散機等を用いた公知の技術を用いることができる。なお、分散液の安定性の観点から、水性成分には、乳化剤や分散剤を添加することが好ましい。

【0026】

ここで、乳化剤及び分散剤としては、高分子乳化分散剤、非イオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤、及びカチオン性界面活性剤及び両性界面活性剤からなる群より選ばれた1種以上が挙げられる。分散液中の界面活性剤の濃度は、特に限定がないが、使用時の感触、分散液の安定性及びハイドロゲル粒子に分散させた油性成分の漏出防止の観点から、分散液全量100重量部に対して0.001～20重量部が好ましく、0.01～5重量部がより好ましい。

## 【 0 0 2 7 】

乳化剤及び分散剤は、単独で用いてもよいが、粒子の延ばしやすさと、洗浄及び配合時のハンドリング性の観点から、非イオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤及び両性界面活性剤からなる群より選ばれた1種以上と、高分子乳化分散剤とを併用することが好ましい。このことにより、カス残りが無く、延ばしやすいハイロドゲル粒子であって、しかも洗浄時や配合時にこわれにくいハイドロゲル粒子をつくりやすくなる。

## 【 0 0 2 8 】

高分子乳化分散剤としては、特に限定されるものではないが、アクリル酸・メタクリル酸アルキル共重合体、特開平7-100356号公報に記載の両性高分子と高級脂肪酸とから合成される新規複合体、特開平8-252447号公報及び特開平9-141079号公報に記載の水溶性両親媒性高分子電解質、特開平9-141080号公報及び特開平9-141081号公報に記載の水溶性架橋型両親媒性高分子電解質、特開平10-53625号公報に記載のアクリル酸系共重合体、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びその誘導体、ポリアクリルアミド、アルキルフェノールホルムアルデヒド縮合物の酸化エチレン付加物などの合成高分子化合物、グアヤガム、カラヤガム、トラガントガム、アラビアガム、アラビノガラクトン、カゼインなどの天然高分子化合物が挙げられる。

## 【 0 0 2 9 】

アニオン性界面活性剤としては、例えば、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸トリエタノールアミン、ラウリル硫酸アンモニウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ステアリン酸ナトリウム、半硬化牛脂肪酸ナトリウム、半硬化牛脂肪酸カリウム、オレイン酸カリウム、ヒマシ油カリウム、アルキルナフタレンスルホン酸ソーダ、ジアルキルスルホコハク酸ナトリウム、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸ナトリウム、アルキルリン酸ジエタノールアミン、アルキルリン酸カリウム、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸トリエタノールアミン、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンラウリルエーテルリン酸ナトリウム等が挙げられる。

## 【 0 0 3 0 】

カチオン性界面活性剤としては、例えば、ラウリルトリメチルアンモニウムクロリド、ステアリルトリメチルアンモニウムクロリド、セチルトリメチルアンモニウムクロリド、ジステアリルジメチルアンモニウムクロリド、アルキルベンゼンジメチルアンモニウムクロリド、ステアリルアミノレエート、ステアリルアミンアセテート、ステアリルアミン酸等が挙げられる。

#### 【0031】

非イオン性界面活性剤としては、例えば、グリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、プロピレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ショ糖脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、テトラオレイン酸ポリオキシエチレンソルビット、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシプロピレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンアルキルエーテル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンヒマシ油、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油等が挙げられる。これらの中でも、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステルが、皮膚刺激性が少ないため好ましい。

#### 【0032】

両性界面活性剤としては、例えば、アルキルジメチルアミノ酢酸ベタイン、アルキルジメチルアミノオキサイド、アルキルカルボキシメチルヒドロキシエチルイミダゾリウムベタイン、レシチン、ラウリルアミノプロピオン酸、アルキルジアミノエチルグリシン等が挙げられる。

#### 【0033】

分散液における油性成分の量は、使用時の感触、ハイドロゲル粒子の洗浄及び配合時の壊れ防止の観点から、7.5 ～60重量%が好ましく、20～40重量%がより好ましい。

#### 【0034】

分散液中のセラミドの含有量は、性能の観点から、7.5 ～60重量%であること

が好ましく、9～30重量%がより好ましい。

#### 【0035】

上記方法にて調製した分散液をゲル化温度以上に加熱し、孔から空気等の気相中あるいは液相中へ分散液を液敵状又は液柱状に吐出する。このとき、この液柱がその表面張力によって液滴になり、更に冷却されて固化する。このとき、吐出速度が大きいと液滴になる前に冷却されて固化する場合があるので、吐出速度をあまり大きくしないほうが好ましい。しかし、分散液に振動を与えると液柱が液滴になるのが促進されるので、製造効率が向上する。また、振動を与えると液滴の大きさが均一になり、粒子の単分散性が向上する。したがって、製造効率及び粒子の単分散性を向上させるため、分散液に振動を与えることが好ましい。その方法は、限定的でないが、孔に振動を与え液柱に振動を与える方法、孔から吐出される分散液に孔から吐出される前に振動を与える方法、孔から吐出した液柱の周囲の液相の冷却液の脈流により多層液柱に振動を与える方法、孔から吐出した液柱の外周に振動リングをセットし液柱に振動を与える方法等が例示される。

#### 【0036】

分散液の粒子化を効率よく行うために、上記の方法のなかでは、孔から吐出される分散液に孔から吐出される前に振動を与える方法が好ましい。

#### 【0037】

分散液に与える振動数は、吐出速度、つまり液柱線速度及び使用する液体粘度より適宜選択される。与える振動数は、限定的でないが、1～2000Hzが好ましく、5～200Hz がより好ましい。

#### 【0038】

分散液を孔から吐出させる際には、振動による分散液の排除体積は、形成される液滴の大きさを均一にする観点から、振動を与えている液体の単位振動あたりの吐出流量の50～1000%、好ましくは100～500 %が望ましい。

#### 【0039】

単位振動あたりの吐出流量（ $q$ ）は、式(I)：

$$q = Q / f \quad [\text{cm}^3] \quad (\text{I})$$

[式中、 $Q$ は振動が与えられた分散液がシリンダー室に供給される供給量（ $\text{cm}^3$ ）

/s)、 $f$  は振動数 (Hz) を示す]

に基づいて求めることができる。

【0 0 4 0】

したがって、必要とされる排除体積 ( $V$ ) は、式 (II):

$$(q \times 1000) / 100 \geq V \geq (q \times 50) / 100 \quad (\text{II})$$

となる。

【0 0 4 1】

なお、排除体積が式 (II) を満足するのなら、加振手段としてピストン以外のものを用いることができる。

【0 0 4 2】

なお、排除体積は、式：

$$V = A \times H$$

[式中、 $A$  はピストンの軸垂直方向における断面積 ( $\text{cm}^2$ )、 $H$  は両振幅 (cm) を示す]

によって求めることができる。

【0 0 4 3】

両振幅は、片振幅の 2 倍であり、片振幅は、通常、振動機の実効値である。

なお、液相で形成させる場合は、液流れのない静液中で形成させてもよいが、液滴形成管を用いて下降流や上昇流や平行流に同伴させて形成させるのが好ましい。同伴させる液の流速は、分散液の流速の 0.8 ～ 5 倍が好ましく、形成される液滴の大きさを均一にする観点から、0.8 ～ 2 倍がより好ましい。また、孔の端面の位置は、気相及び液相のいずれであってもよいが、液相中で液滴を形成させる場合には液相が好ましい。

【0 0 4 4】

孔の径は、特に限定されないが、通常、0.1 ～ 5 mm である。孔から吐出される分散液の温度は、ゲル化温度以上であれば特に限定されないが、通常、40 ～ 100 °C である。

【0 0 4 5】

孔から吐出される分散液の粘度は、特に限定されないが、B 型粘度計 (回転数

60r/min)で測定したとき、通常、0.1 ～1000mPa・s、好ましくは1～800mPa・sである。

【0046】

分散液を固化させる気体又は液体の温度は、ゲル化温度以下であり、好ましくは40℃以下で、より好ましくは20℃以下がよい。

【0047】

以上のようにして、ハイドロゲル粒子が得られる。得られたハイドロゲル粒子の平均粒径は、外観及び生産性の観点から、100 ～10000 μm であることが好ましく、500 ～5000 μm がより好ましい。ハイドロゲル粒子の平均粒径は、各種目開きのふるいを用い、粒子100gを水中で湿式分級し、余分な水分を濾紙で除去した後重量を測定して重量平均粒径で表すことができる（フルイ法）。

【0048】

また、ハイドロゲル粒子の形状は、特に限定するものではないが、美観の観点から球状体であることが好ましい。ここで、粒子の最長の径と最短の径の比〔最長径／最短径〕は、粒子を投影した全ての2次元の形状において、美観の観点から、1.7 以下、好ましくは1.5 以下、より好ましくは1.2 以下であるのが望ましい。ハイドロゲル粒子は、この比が1.7 以下の球状体を80重量%以上含有することが望ましい。

【0049】

また、ハイドロゲル粒子の強度は、特に限定するものではないが、感触の観点から、ハイドロゲル粒子の圧縮破断応力が2～40kPa、好ましくは5～25kPaであり、ハイドロゲル粒子の弾性率が10～150kPa、好ましくは30～100kPaであることが望ましい。

【0050】

圧縮破断応力が2 kPa 以上である場合、ハイドロゲル粒子の洗浄や配合時にハイドロゲル粒子が壊れがたく、40kPa 以下である場合、皮膚上での伸びやなじみが良好である。

【0051】

弾性率が10kPa 以上である場合、ハイドロゲル粒子の洗浄や配合時にハイドロ

ゲル粒子が壊れがたく、洗浄時にハイドロゲル粒子に分散させた油性成分が流れ出ることがない。また、弾性率が150 kPa 以下である場合、ハイドロゲル粒子を容器に配合したときの容器からの吐出性が良好である。

#### 【0052】

圧縮破断応力の測定には、デジタルフォースゲージ〔日本電産シンポ（株）製、商品名：FGX-0.2R、最小測定荷重 2 mN〕を試験機用スタンド〔日本電産シンポ（株）製、商品名：FGX-50V-L〕に取り付け用いた。測定子には平面形状のアダプタを用い、測定子の下降速度は10mm/min に設定した。測定温度は室温（25℃）である。

#### 【0053】

ハイドロゲル粒子の圧縮破断応力は、公称応力（破断強度を粒子の測定前の断面積で除した値）で計算を行なった。

#### 【0054】

##### 【実施例】

##### 実施例 1 ～ 2

表 1 に示した組成比の油性成分と、水性成分の合計量500 g をそれぞれ80℃及び90℃で加熱溶解した後、水性成分溶液を80℃に冷却し、80℃でアンカー式攪拌機で攪拌し、混合液を得た。更に、この混合液を乳化機〔特殊機化（株）製、商品名：T.K.ホモミクサー-MARK II 2.5 型〕にて8000r/min で1分間分散させ、分散液を調製した。この分散液を80℃に加熱したまま、吐出速度15mL/minで口径1.2mm のノズルより10℃に冷却したオイル〔メチルポリシロキサン：信越化学工業（株）製、商品名：シリコーンKP-96A(20CS)〕中に吐出させた。この時、分散液に排除体積50%の振幅で60Hzの振動を与えて、液滴を生成させ、冷却固化した。その後、粒子を固液分離／洗浄し、単分散性の高いハイドロゲル粒子を得た。分散液の吐出させる際の粘度は 55mPa・s(55cP) であった。

#### 【0055】

##### 実施例 3 ～ 4

表 1 に示した組成比の油性成分と、水性成分をそれぞれ80℃及び90℃で加熱溶解した後、水性成分溶液を80℃に冷却し、80℃でアンカー式攪拌機で攪拌し、更

にタルクを加え混合液を得た。油性成分、水性成分及びタルクの合計量は500gであった。更に、この混合液を実施例1と同様の方法で処理し、単分散性の高いハイドロゲル粒子を得た。分散液の吐出させる際の粘度は  $65\text{mPa}\cdot\text{s}$  (65cP) であった。

【0056】

#### 比較例1

吐出速度を $7.5\text{mL}/\text{min}$ にし、分散液に振動は与えなかった以外は、実施例1と同様にしてハイドロゲル粒子を得た。

【0057】

#### 比較例2

実施例2で調製した分散液を用いた以外は、比較例1と同様にして、ハイドロゲル粒子を得た。

【0058】



【表 1】

実 施 例 番 号			1	2	3	4
ハイドロゲル粒子の組成 (重量%)	油性成分	ペンタエリトリット脂肪酸エステル	15.0	5.0	15.0	5.0
		ジイソステアリン酸グリセリル	5.0	10.0	5.0	10.0
		メチルシリロキサン [信越化学工業(株)製、シリコン KP-9 6A(10CS)]	5.0	5.0	5.0	5.0
		N-(2-ヒドロキシ-3-ヘキセシロキプロピル)-N-2-ヒドロキシethylヘキサデカミド [花王(株)製、スイングロイド B]	10.0	10.0	10.0	10.0
	水性成分	イオン交換水	63.4	69.14	62.4	68.14
		寒天(UP-16) [伊那食品工業(株)製]	1.0	0.5	1.0	0.5
		ポリオキシ安息香酸メチル	0.3	0.3	0.3	0.3
		ポリオキシエチレンオキシルエーテルリン酸ナトリウム [花王(株)製、SPE-104NB]	0.3	0.05	0.3	0.05
		アクリル酸・メタクリル酸アルキル共重合体 [日光ケミカルズ(株)製、PEMULEN(TR-1)]	—	0.01	—	0.01
		タルク(粉末) [株山口雲母工業所製]	—	—	1.0	1.0

【0059】

## 評価

次に、各実施例及び比較例で得られたハイドロゲル粒子を用いて以下の評価を行った。その結果を表 2 に示す。

【0060】

## (1) ハイドロゲル粒子の平均粒径

ハイドロゲル粒子の平均粒径は、各種目開きのふるいを用い粒子 100 g を水中で湿式分級し、余分な水分を濾紙で除去した後に重量を測定して重量平均粒径で示した。

## 【 0 0 6 1 】

## (2) 球形度

ハイドロゲル粒子を 3 g サンプルングし、粒子が重ならないようにシャーレ上に水で分散させ、カメラにて撮影した。この写真に写った各粒子の最長の径と最短の径を測定し最長の径と最短の径の比〔最長径／最短径〕が 1.7 以下となる粒子を球形度が高い粒子とし、この球形度の高い粒子が 80% 以上を占めるものを○、50% 以上のものを△、50% 未満のものを×として示した。

## 【 0 0 6 2 】

## (3) 単分散性

球形度を求めるときに測定した、粒子の最長径をその粒子の粒径とし、測定した粒径の標準偏差と算術平均より CV 値を求める。この CV 値が 5 以下のものを単分散性が良好とする。最大粒径と最小粒径を示す。両者の差が小さい方が好ましい。

## 【 0 0 6 3 】

【表 2】

実施例 番号	ハイドロゲル粒子の物性					
	平均粒径 [mm]	球形度	単 分 散 性			
			最小粒径[mm]	最大粒径[mm]	CV値	評価
1	2.04	○	1.95	2.10	1.30	良好
2	2.01	○	1.93	2.10	1.28	良好
3	1.98	○	1.91	2.08	1.25	良好
4	2.00	○	1.90	2.07	1.29	良好
比較例 1	2.15	×	1.63	3.05	12.0	不良
2	2.21	×	1.72	3.20	12.5	不良

## 【 0 0 6 4 】

表 2 に示された結果から、各実施例で得られたハイドロゲル粒子は、球形度が

高く、単分散性が良好であることがわかる。

【 0 0 6 5 】

【発明の効果】

本発明のハイドロゲル粒子の製造法によれば、化粧品、医薬品、医薬部外品等に適用される油性成分を高濃度で安定して分散させた、球形度が高く、単分散性の良好なハイドロゲル粒子を効率よく製造することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

化粧品、医薬品、医薬部外品等に適用される油性成分を高濃度で安定して分散させた、球形度が高く、単分散性の良好なハイドロゲル粒子を効率よく製造する方法を提供すること。

【解決手段】

非架橋型ハイドロゲルを溶解した水性成分溶液中に油性成分を分散させた分散液に振動を与えながら、該分散液を孔から吐出し、液滴を形成させた後、該液滴を冷却固化するハイドロゲル粒子の製造法。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000918]

1. 変更年月日 1990年 8月24日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号

氏 名 花王株式会社